

S/N unknown

PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: Tatsumi et al. Serial No.: unknown  
Filed: concurrent herewith Docket No.: 12109.44US01  
Title: ADSORBENT, ADSORPTION COLUMN AND APPARATUS FOR  
PRESSURE SWING ADSORPTION SEPARATION

JC973 US 8589267 Pro  
09/05/15/01  
#2

CERTIFICATE UNDER 37 CFR 1.10

'Express Mail' mailing label number: EL815521937US

Date of Deposit: May 15, 2001

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the United States Postal Service 'Express Mail Post Office To Addressee' service under 37 CFR 1.10 on the date indicated above and is addressed to the Assistant Commissioner for Patents, Washington, D.C. 20231.

By: Yolanda Gray  
Name: Yolanda Gray

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT(S)

Assistant Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231

Dear Sir:

Applicants enclose herewith one certified copy of a Japanese application, Serial No. 2000-192303, filed June 27, 2000, the right of priority of which is claimed under 35 U.S.C. § 119.

Respectfully submitted,

MERCHANT & GOULD P.C.  
P.O. Box 2903  
Minneapolis, Minnesota 55402-0903  
(612) 332-5300

Dated: May 15, 2001

By Curtis B. Hamre  
Curtis B. Hamre  
Reg. No. 29,165

CBH/sef/jlc

日本国特許庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application:

2000年 6月27日

出願番号  
Application Number:

特願2000-192303

出 願 人  
Applicant (s):

日本酸素株式会社

2000年 9月29日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

# 巴川耕

【書類名】 特許願

【整理番号】 00E012

【提出日】 平成12年 6月27日

【あて先】 特許庁長官 近藤 隆彦 殿

【国際特許分類】 B01D 53/34

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区西新橋1-16-7 日本酸素株式会社内

【氏名】 畠 泰郎

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区西新橋1-16-7 日本酸素株式会社内

【氏名】 川井 雅人

【特許出願人】

【識別番号】 000231235

【氏名又は名称】 日本酸素株式会社

【代理人】

【識別番号】 100086210

【弁理士】

【氏名又は名称】 木戸 一彦

【電話番号】 03-3256-6469

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 010962

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 圧力変動吸着分離用の吸着剤及び吸着筒並びに装置

【特許請求の範囲】

【請求項1】 圧力変動吸着分離法により多成分混合ガス中の目的成分ガスを分離採取するために使用する吸着剤において、該吸着剤のサイズを、該吸着剤が球状のときは直径を、該吸着剤が円柱状、楕円球状、楕円柱状のときは相当直径を、 $1.0 \pm 0.2 \text{ mm}$ の範囲にしたことを特徴とする圧力変動吸着分離用吸着剤。

【請求項2】 圧力変動吸着分離法により多成分混合ガス中の目的成分ガスを分離採取するために使用する吸着剤において、該吸着剤をタイラー標準ふるいで粒径分布を測定したときに、該粒径分布が12メッシュから20メッシュまでの範囲の吸着剤粒子が少なくも70%以上含まれていることを特徴とする圧力変動吸着分離用吸着剤。

【請求項3】 前記多成分混合ガスが空気であり、目的成分ガスが酸素であることを特徴とする請求項1又は2記載の圧力変動吸着分離用吸着剤。

【請求項4】 前記吸着剤が、Ca-A型ゼオライト、あるいは、Na-X型及び該Na-X型のNaの少なくも一部をCa, Mg又はLiでイオン交換したゼオライトのいずれかであることを特徴とする請求項1又は2記載の圧力変動吸着分離用吸着剤。

【請求項5】 前記圧力変動吸着分離法が、真空再生を行う圧力変動吸着分離法であることを特徴とする請求項1又は2記載の圧力変動吸着分離用吸着剤。

【請求項6】 圧力変動吸着分離法により多成分混合ガス中の目的成分ガスを分離採取するための吸着剤を充填した吸着筒において、前記吸着剤のサイズが、該吸着剤が球状のときは直径を、該吸着剤が円柱状、楕円球状、楕円柱状のときは相当直径を $a \text{ [mm]}$ としたときに、空塔速度 $u \text{ [m/s]}$ が、 $u = 0.07a + 0.095$ の $\pm 25\%$ の範囲になるように設定したことを特徴とする圧力変動吸着分離用吸着筒。

【請求項7】 前記吸着剤は、該吸着剤の直径又は相当直径 $a$ が、 $1.0 \pm 0.2 \text{ mm}$ の範囲であることを特徴とする請求項6記載の圧力変動吸着分離用吸

着筒。

【請求項8】 前記吸着剤は、該吸着剤をタイラー標準ふるいで粒径分布を測定したときに、該粒径分布が12メッシュから20メッシュまでの範囲の吸着剤粒子が少なくも70%以上含まれていることを特徴とする請求項6記載の圧力変動吸着分離用吸着筒。

【請求項9】 前記多成分混合ガスが空気であり、目的成分ガスが酸素であることを特徴とする請求項6記載の圧力変動吸着分離用吸着筒。

【請求項10】 前記吸着剤が、Ca-A型ゼオライト、あるいは、Na-X型及び該Na-X型のNaの少なくも一部をCa, Mg, Liでイオン交換したゼオライトのいずれかであることを特徴とする請求項6記載の圧力変動吸着分離用吸着筒。

【請求項11】 前記圧力変動吸着分離法が、真空再生を行う圧力変動吸着分離法であることを特徴とする請求項6記載の圧力変動吸着分離用吸着筒。

【請求項12】 請求項6乃至11のいずれか1項記載の吸着筒を備えていることを特徴とする圧力変動吸着分離装置。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

##### 【発明の属する技術分野】

本発明は、圧力変動吸着分離用吸着剤及び圧力変動吸着分離用吸着筒並びに圧力変動吸着分離装置に関するものであって、詳しくは、圧力変動吸着分離法により多成分混合ガス中の目的成分ガス、例えば空気中の酸素を分離採取するために使用する吸着剤の最適なサイズ、及び、該吸着剤のサイズに対応した最適条件で圧力変動吸着分離法を実施することができる吸着筒の形状、並びに、この吸着筒を使用した圧力変動吸着分離装置に関する。

##### 【0002】

##### 【従来の技術】

圧力変動吸着分離法(PSA)により、多成分混合ガスを原料ガスとし、目的成分ガスを分離採取するための主たる操作は、原料ガスを加圧した後、吸着剤を充填した吸着筒に導入し、吸着剤に原料ガスを接触させて原料ガス中の易吸着成

分を選択的に吸着させるとともに、難吸着成分を分離回収する吸着操作と、吸着筒の圧力を減圧し、易吸着成分を吸着している吸着剤から易吸着成分を脱着させ、吸着剤を再生する再生操作とにより行われている。

#### 【0003】

上記再生操作の方法は、大きく二つに分けられ、一つは吸着筒を大気圧以下まで減圧して行う方法（真空再生法）と、大気圧程度まで減圧して行う方法（常圧再生法）とがある。真空再生法での吸着操作は、原料ガスの圧縮動力を小さくするため、比較的大気圧に近い圧力条件で行われることが多く、大容量の製品ガス発生に適している。一方、常圧再生法では、再生操作が大気圧で行われるので、吸着圧力と大気圧との圧力差を十分とするために吸着圧力を高く設定する必要があり、原料ガスの圧縮動力は多くなるが、真空ポンプや製品ガス圧縮機を必要としないので、少容量の製品ガスを発生する際に多く使用されている。特に、原料ガスを空気とし、製品ガスを酸素としたとき、医療用等で少量の製品酸素が若干の圧力を持っていることが供給上都合がよい場合等に用いられることが多い。

#### 【0004】

また、圧力変動吸着分離法に用いられる装置の構成は、原料ガス圧縮機と、少なくとも一つの吸着筒と、製品槽と、必要に応じて設けられる吸着剤再生用の真空ポンプや製品ガスの圧送機とを備えるとともに、これらの機器を連結する分離プロセスに対応した配管とにより形成されている。さらに、圧力変動吸着分離装置では、コンピューター、シーケンサー等の制御機器を用いて、予め入力された分離プロセスのプログラムに従って電気信号を出し、自動切換え弁の開閉を制御し、前述の吸着・再生の操作を繰り返すことにより製品であるガスが分離回収される。

#### 【0005】

このような圧力変動吸着分離法で用いられる吸着剤には、例えば空気から酸素を製品として得る場合は、吸着除去すべき対象成分が窒素であるため、窒素を選択的に吸着する吸着剤としてゼオライトを使用している。このゼオライトとしては、例えば、Ca-A型、Na-X型、Ca-X型、Ba-X型が好適である。最近は、Na-X型のNaイオンを種々のイオンで交換したゼオライト、特にL

iイオンで交換したゼオライトLi-X型が広く用いられている。

#### 【0006】

また、圧力変動吸着分離装置の一般的設計法に関しては、A. I. L a C a v a等の文献、CHEMICAL ENGINEERING/JUNE 1998, p p. 110-118がある。この文献では、圧力変動吸着分離装置の構成機器の設計法について詳細に説明しているが、圧力変動吸着分離プロセスの開発は、小型装置による実験から始まるとし、小型実験で得られる性能は工業規模装置より高めの値を与えるので、リスク回避の一つの方法は、中間規模のパイロット装置を作ることであると記載している。続けて、「パイロット装置の筒高さは必要とされる実装置規模と同等とすべきである。一般的には2m程度である。」と言う記述がある。この文献に述べられているように、一般的な吸着筒の設計方法として、実装置の吸着筒の大きさは、以下のようにして決められている。

#### 【0007】

まず、用いる吸着剤を決めて小型装置での実験、パイロット装置での実験を行い、用いた吸着剤重量当たり（容積当たりでも良い）の製品量を求める。次に、実装置で必要とされる製品量を前項の吸着剤量当たり発生製品量で割ると、必要とする吸着剤重量（あるいは吸着剤容積）が求められる。そして、吸着筒の充填高さを実験と同一とすると、「吸着剤重量=吸着剤充填容積×吸着剤充填密度」という関係から、吸着筒の直径が求められる。上記方法により、過去様々な種類の吸着剤を用いた圧力変動吸着分離法による装置設計が行われてきた。

#### 【0008】

また、ここで用いられる吸着剤の形状も様々である。特に、吸着剤の粒径は、一般的には1/16インチサイズ、1/8インチサイズのペレットや、8~12メッシュのビーズ等が多く採用されているが、更に小さい粒径の吸着剤も用いられていた。通常、大きい吸着剤粒子を用いた場合は、吸着剤充填層の圧力損失は小さいが、吸着剤内部への吸着分子の拡散経路が長くなるため、総括の物質移動係数は小さくなる。

#### 【0009】

一方、相対的に小さい吸着剤粒子を用いた場合は、吸着剤充填層の圧力損失は

大きいが、物質移動係数は大きくなるという傾向を持つとされている。吸着剤充填層の圧力損失は、原料空気の供給にあたって大きい動力を必要とすることになり、また、物質移動係数の大きさは、いわゆる吸着帯長さ (Mass Transfer Zone) に關係するため、必要とする吸着剤量に関わってくる。さらに、真空再生を行う場合は、吸着筒下部の圧力と上部の圧力とに差ができる、吸着筒内の場所毎に吸着剤の再生程度が異なるという問題が発生する。

#### 【0010】

このため、用いる吸着剤粒子径をいかなる寸法、形状にするかは、吸着装置設計にとって大きい問題であったが、様々な寸法、形状の吸着剤を、どのように使い分けるかについての定量的な指針が従来は無かった。そこで、効率的な吸着装置の設計、すなわち、吸着剤使用量を最少とし、かつ、圧力変動吸着分離装置としての性能をいかに良くするか、特に、電力原単位に優れた装置とするための方法が種々工夫されている。

#### 【0011】

例えば、分離技術11巻5号p11~17(1981)では、ガス中の水分除去を例として、小粒径吸着剤と大粒径吸着剤との組み合わせを提案している。この場合、上流側に大粒径、下流側に小粒径の吸着剤をそれぞれ配置することにより、上流側での圧力損失を小さくできるとともに、下流側での吸着帯の幅(長さ)を小さくできるということが述べられている。すなわち、大粒径吸着剤のみを用いた場合の、圧力損失は小さいが吸着剤使用量は多いという問題と、小粒径吸着剤のみを用いた場合の、圧力損失は大きいが吸着剤使用量は少ないという問題とを、小粒径吸着剤と大粒径吸着剤とを組み合わせることで融和、調和し、それぞれの粒径の吸着剤が持つ相反する問題の解決を図っている。しかし、吸着剤層床の厚さについては、充填層の圧力損失に関するエルガンの式を示し、粒子径と共に充填空隙率が重要との指摘をしているのみであり、動力的に最少となる大粒径吸着剤、小粒径吸着剤の積み方は示唆されていない。

#### 【0012】

一方、特開平11-179132号公報には、従来技術として、過去の圧力変動吸着分離法に関する特許の中から、用いる吸着剤粒子径とそのときの吸着剤層

床の厚さ、更に、圧力変動吸着分離操作のサイクル時間とを開示した多くの例を挙げ、同じ直径の粒子について、床の厚さは互いにかなり異なり、正確に選定できること、吸着筒内の死容積による形状的束縛が考慮されていないことを指摘している。

#### 【0013】

その上で、同公報には、吸着剤層床の厚さが吸着剤が球状であるときは、実質的に直径のみに依存し、死容積の形状的束縛を考慮して圧力変動吸着分離法のエネルギー消費にマイナスの影響を持たないような圧力変動吸着分離法を提供すると述べて、吸着剤粒度と吸着剤層床の厚さとの関係を開示し、吸着剤層床の好適な範囲、吸着剤粒度の好適な範囲を示している。しかし、与えられた関係式では変数が2個あり、粒子径を決めて不等式の範囲内で通常用いられるような床厚さが幅広く示されるのみであって、この径を持つ粒子が最も性能を良くするというようなことは述べられていない。

#### 【0014】

また、圧力変動吸着分離法に用いられる吸着塔の設計に関して、用いる吸着剤の種類は、吸着剤メーカーから購入できるものの中から、静的／動的吸着性能を考慮して決定されるが、酸素を採取する圧力変動吸着分離装置に用いられる吸着剤の粒子径として、該装置の性能を最も高めることができるものの、すなわち、電力原単位を低くすることができる粒子径はどのようなものであるか、このような吸着剤をどのようなガス流速の元で使用すべきか、そのときの充填高さをいかにすべきか、については、先のLaCava等の文献が示すように、実験を基準として決めるほかに手段が無く、技術的改善が求められていた。

#### 【0015】

##### 【発明が解決しようとする課題】

そこで、本発明者らは、酸素を製品とする圧力変動吸着分離装置の電力原単位を指標とし、吸着剤の粒子形状や寸法を様々に変えて、電力原単位が最も低くなるような粒子形状、寸法を種々検討した。その結果、ある特定の吸着剤粒子寸法が電力原単位を最も低くできることを見出した。

#### 【0016】

さらに、様々な粒子形状、寸法の吸着剤に対して最適な吸着筒の形状、すなわち、吸着剤の形状特性に対して最適なガス空塔速度があることを明らかにし、選定した吸着剤の形状特性に基づいて吸着筒の径を決定することにより、従来以上の圧力変動吸着分離性能が得られることを見出した。

## 【0017】

本発明は、上記知見に基づいて成されたものであって、圧力変動吸着分離法により多成分混合ガス中の目的成分ガスを分離採取するにあたり、特に、圧力変動吸着分離法により空気中の酸素を製品として採取するにあたり、電力原単位を低減できる吸着剤の寸法及び形状、選定した吸着剤に対して最適な形状の吸着筒、圧力変動吸着分離性能に優れた圧力変動吸着分離装置を提供することを目的としている。

## 【0018】

## 【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するため、本発明の圧力変動吸着分離用吸着剤は、圧力変動吸着分離法により多成分混合ガス中の目的成分ガスを分離採取するために使用する吸着剤において、第1の構成では、該吸着剤のサイズを、該吸着剤が球状のときは直径を、該吸着剤が円柱状、楕円球状、楕円柱状のときは相当直径を、1.0±0.2mmの範囲にしたことを特徴としている。

## 【0019】

また、圧力変動吸着分離用吸着剤の第2の構成は、前記吸着剤をタイラー標準ふるいで粒径分布を測定したときに、該粒径分布が12メッシュから20メッシュまでの範囲の吸着剤粒子が少なくも70%以上含まれていることを特徴としている。

## 【0020】

本発明の圧力変動吸着分離用吸着筒は、圧力変動吸着分離法により多成分混合ガス中の目的成分ガスを分離採取するための吸着剤を充填した吸着筒において、前記吸着剤のサイズが、該吸着剤が球状のときは直径を、該吸着剤が円柱状、楕円球状、楕円柱状のときは相当直径を  $a$  [mm] としたときに、空塔速度  $u$  [m/s] が、 $u = 0.07a + 0.095$  の±25%の範囲になるように設定した

ことを特徴とするものであって、特に、使用する吸着剤が、前記本発明の圧力変動吸着分離用吸着剤であることを特徴としている。さらに、本発明の圧力変動吸着分離装置は、上記吸着筒を使用した圧力変動吸着分離装置である。

#### 【0021】

本発明では、特に、前記多成分混合ガスが空気であり、目的成分ガスが酸素である場合に最適であり、前記吸着剤としては、Ca-A型ゼオライト、あるいは、Na-X型及び該Na-X型のNaの少なくも一部をCa, Mg又はLiでイオン交換したゼオライトのいずれかを好適に使用できる。さらに、前記圧力変動吸着分離法が、真空再生を行う圧力変動吸着分離法である場合に、より有効である。

#### 【0022】

ここで、圧力変動吸着分離プロセスは、吸着筒内の圧力、温度、ガス流量、ガス組成が時間と共に複雑に変化する非定常プロセスであり、装置性能を把握するためには、実験と共にダイナミックシミュレーションが有効である。以下ダイナミックシミュレーションを用いて本願発明を説明する。

#### 【0023】

日本酸素技報No. 17, p18-24 (1998)には、酸素を製品とする圧力変動吸着分離法（以下、酸素PSAという）のシミュレーション方法が記載されている。ここで、対象としている酸素PSAは2塔式であり、そのプロセスは、充圧／製品回収工程、均圧工程、真空再生工程、ページ再生工程、均圧工程からなり、いくつかの仮定の下に理論モデルが組み立てられている。また、基礎方程式は、全体の物質収支、各成分の物質収支、吸着速度式、平衡吸着量推算式、熱収支式等から成っている。

#### 【0024】

さらに、物質収支は、原料空気を供給する空気ブロワー送気量と、製品量及び吸着剤を再生する排気用真空ポンプの排気ガス量の和とが等しくなるように、空気ブロワー吐出圧力及び／又は真空ポンプ到達真空度を調整要素として取られる。前記物質収支によって圧力変動吸着分離装置（PSA装置）に付属する回転機の条件が決まり、従って、回転機に必要な電力量が求められ、ひいてはPSA装

置にとって最も重要な性能の一つである電力原単位が求められる。

【0025】

先のシミュレーターに、吸着剤特性として粒子径と粒子内物質移動係数の関係式（河添邦太郎：化学工学，31.4.354-358.（1967））を入れて、吸着剤粒子径と吸着速度とを関係付けた。勿論、実測により総括物質移動係数と粒子径との関係を求めて差し支えない。

【0026】

また、吸着剤粒子径が電力原単位に直接影響する要素と考えられるので、吸着剤充填層に対してエルガンの式を適用し、充填する吸着剤粒子径を変えることによる充填層高さ方向の圧力損失を計算し、吸着筒内の各高さにおける吸着圧力／再生圧力を求めて製品酸素量及び消費動力に対する影響を演算した。

【0027】

前記シミュレーターを用いて、まず、真空再生式P S A装置（V S A）において、空気プロワー容量、真空ポンプ容量、用いる吸着剤量を一定の条件の下に、用いる吸着剤粒子径を決め、吸着筒径を種々変えて規定濃度の酸素ガス（例えば93%O<sub>2</sub>）が得られる量を求めた。空気プロワーと真空ポンプとの消費動力の和を、製品酸素ガス量で割ると電力原単位が求まり、電力原単位が最少値になるときの吸着筒径がその吸着剤粒子径における最も望ましい吸着筒径になる。

【0028】

一方、前記計算により、P S A装置に原料空気として供給すべき原料空気量が求められる。ここに、原料空気量を標準状態（0°C、1 atm絶対圧）に換算し、吸着筒断面積で割った値を空筒速度と定義する。用いる吸着剤粒子径を変えて前記同様に計算すると、吸着剤粒子径毎に最適な空筒速度が得られる。

【0029】

さらに付言すれば、P S A装置の設計において、実験あるいはシミュレーションから、所定のP S A操作の実行によって酸素の回収率、吸着剤単位量当たりの酸素発生量が得られる。すなわち、実装置において要求される酸素量（純酸素量換算値）に対して、

$$\text{必要原料空気量} = (\text{純酸素換算}) \text{ 必要酸素量} / (\text{酸素回収率} \times \text{空气中酸素含有率})$$

必要吸着剂量 = 要求酸素量 / 吸着剤単位量当たり酸素発生量

吸着塔断面積 = 必要原料空気量 / 空筒速度

吸着剤充填高さ = 必要吸着剂量 / (充填密度 × 吸着塔断面積)

というような計算により、吸着筒の形状（筒径）が決定できる。なお、酸素回収率は、原料空气中に含まれる酸素の含有量をベースにしている。

### 【0030】

本発明において、吸着剤粒子径とは、球形粒子においては直径を、その他の形状においては相当直径を意味する。例えば、直径  $d$ 、高さ  $h$  の円柱状（ペレット状）の吸着剤の場合は、

$$\text{表面積/体積} = (2d + 4h) / (d \times h)$$

に対して、相当直径  $a$  を持つ球と仮定した場合、前記式と同様にすると、

$$\text{表面積/体積} = 6/a = (2d + 4h) / (d \times h) \text{ から、}$$

$$a = 3d \times h / (d + 2h) \text{ となる。}$$

### 【0031】

このような関係は、Fundamentals of Adsorption.

Proceedings of the Engineering Foundation Conference held at Schloss Elmau, Bavaria, West Germany, (1983) p 49~に記載されているが、本発明で採用する相当直径は、これに限定されるものでなく、粒径分布のピーク値あるいは分布の平均値等、簡易的な方法で決めた直径も包含する。

### 【0032】

そして、本発明の吸着剤は、従来、一般的に用いられてきた吸着剤の形状及び寸法、すなわち、1/8インチサイズ、1/16インチサイズのペレット形状あるいは8~12メッシュのビーズ形状等の形状及び寸法を持つ吸着剤における前記直径又は相当直径に対して、前記シミュレーターにて演算し、圧力損失と物質移動係数の大きさとの関わり合いで、直径又は相当直径が1mmの吸着剤を使えば、原単位的に最も良い値まで最適化が可能という結論を得、さらに、該結論は、プロセスとは関係しないことも示すとともに、最適な空塔速度を求め、選定し

た吸着剤の形状及び寸法と空塔速度との関係を導きだし、前記関係式に基づいて吸着筒の径を決定することにより、P S A法によって空気から酸素ガスを分離回収する装置におけるP S A性能を従来以上のものとすることができる。

### 【0033】

#### 【発明の実施の形態】

図1は、上述のシミュレーションの対象としたP S A装置を示す系統図である。なお、ここでは、2筒式のP S A装置を示したが、特にこれに限定するものではないこと言うまでもない。

### 【0034】

図1に示す2筒式P S A装置は、原料空気プロワー11、二つの吸着筒12a, 12b、サージタンク13、真空ポンプ14、吸着筒12a, 12b内にそれぞれ充填した吸着剤及び関係配管（弁を含む）と制御装置とにより形成されている。空気の流れを簡単に説明すると、大気中の空気は、原料空気プロワー11で500～5000mmAq (4900～49030Pa) まで加圧された後、吸着筒12a, 12bのいずれか、例えば吸着筒12aに導入される。吸着筒12aでは、水分等の不純物及び窒素ガスが吸着剤に吸着され、吸着されにくい酸素ガスが吸着筒12aの頂部から導出される。導出された酸素ガスは、サージタンク13に送られ、その一部が製品として導出されるとともに、残部は再生中の他方の吸着筒12bのガスバージや再生済みの吸着筒12bの充圧に使用される。一方、吸着剤に吸着されたガスは、真空ポンプ14で吸着筒内が減圧されることにより脱着し、これによって吸着剤が再生される。真空ポンプ14からは排ガスが排出される。

### 【0035】

本装置におけるP S Aプロセスの一例を図2に示す。P S Aプロセスとしては、これに限定されることなく幾多のプロセスが利用できる。代表例としての図2のプロセスを説明すると、対象としている2塔式P S Aのプロセスは、（イ）充圧／製品回収工程、（ロ）均圧工程、（ハ）真空再生工程、（ニ）バージ再生工程、（ホ）均圧工程、の各工程からなるものである。各工程について、2塔のうちの1筒、吸着筒12aに着目して説明する。

## 【0036】

(イ) 充圧／製品回収工程では、原料空気ブロワー11から供給される原料空気が吸着筒12aの下部から導入され、該吸着筒12a内を上昇し、この間に不純物である水、炭酸ガス、窒素が吸着除去されて該吸着筒12aの頂部から酸素ガスが導出され、サージタンク13を経て製品として採取される。

## 【0037】

(ロ) 均圧工程では、該吸着筒12aへの原料空気の導入及び該吸着筒12aからの製品取り出しが一旦停止される。そして、該吸着筒12aのガスは、該吸着筒12aの上下部から同時に他の吸着筒12bへ導かれる。

## 【0038】

(ハ) 真空再生工程では、該吸着筒12aの底部から筒内のガスを真空ポンプ14に導いて該吸着筒12aを減圧再生する。

## 【0039】

(ニ) パージ再生工程では、前記真空再生工程が所定の真空度に到達したとき、サージタンク13から採取した酸素の一部を該吸着筒12aの頂部から導入し、かつ、真空ポンプ14による減圧を続行する。

## 【0040】

(ホ) 均圧工程では、前記パージ再生が終了したとき、前記均圧工程(ロ)とガスの流れを逆にし、他の吸着筒12bからのガスを該吸着筒12aの頂部及び底部から受け入れる。そして、該吸着筒12aの圧力が所定の均圧終了圧力まで上昇したとき、(イ)の吸着工程に戻り、該吸着筒12aの底部から原料空気を導入し、該吸着筒12aを加圧し、所定の圧力に到達したときに、該吸着筒12a頂部からサージタンク13へ製品の導出が始まる。

## 【0041】

以上の各工程を両吸着筒12a, 12bについて交互に繰り返すことにより、製品酸素ガスを連続的に採取することができる。また、各工程の切り替え条件を、前記説明では圧力を条件として記述したが、時間を条件としてもよい。

## 【0042】

本シミュレーションを行うにあたり、吸着筒12a, 12bには、原料空気流

入端側に水分吸着用として活性アルミナが、下流側に窒素吸着分離用のゼオライトとして高度にLiイオン交換したX型がそれぞれ充填されていると仮定した。そして、各吸着剤の充填容積は、活性アルミナを約0.4 m<sup>3</sup>、ゼオライトを約2.2 m<sup>3</sup>とし、各計算で一定とした。その他のPSAの運転条件を以下に示す

## 【0043】

サイクルタイム	82秒
充圧／製品回収工程	37秒
均圧工程	4秒
真空再生工程	27秒
バージ再生工程	10秒
均圧工程	4秒
原料空気温度	300K
製品純度	93.0%
バージガス流量	160 Nm <sup>3</sup> / h

## 【0044】

また、計算に用いたパラメーターを以下に示す。なお、計算の精度として、計算格子は、格子長さ0.01mの等間隔格子を使用し、時間刻み0.1secで時間積分を行った。

## 【0045】

## 原料空気組成

水蒸気	0.5%
窒素	77.7%
酸素	20.9%
アルゴン	0.9%
壁-充填層間熱伝達係数	1.0 W / (m <sup>2</sup> · K)

(活性アルミナ) (ゼオライト)

充填量	320 kg	1400 kg
充填密度	784 kg / m <sup>3</sup>	644 kg / m <sup>3</sup>

空隙率	0.4	0.37
熱容量	1050 J/(kg·K)	920 J/(kg·K)

## 【0046】

また、PSA操作が定常状態になるまでを約2000サイクルとし、該定常状態における装置性能をシミュレーション結果とした。

## 【0047】

まず、吸着剤粒子の相当直径  $a$  が 0.6 mm、1.0 mm、1.6 mm の 3 種類について、原料空気の空塔速度を変えたときの電力原単位の変化を求めた。求めた結果から、相当直径  $a$  が 1.0 mm における電力原単位が最少値を示した値を基準として電力原単位の比を算出し、原料空気の空塔速度  $u$  と相関させたものを図3に示す。

## 【0048】

次に、図3から、各粒子相当直径  $a$  と、各粒子相当直径  $a$  において電力原単位が最少となる原料空気の空筒速度  $u$  とを求め、吸着剤の粒子相当直径  $a$  と電力原単位が最少となる原料空気の空筒速度  $u$  との関係を算出した。その結果を図4に示す。

## 【0049】

そして、図4から、吸着剤の相当直径  $a$  と電力原単位が最少となる原料空気の空筒速度  $u$  との関係が直線で近似でき、以下の式で表されることがわかる。

$$u = 0.07a + 0.095$$

## 【0050】

さらに、図3から、各粒子相当直径  $a$  に対する電力原単位の比が電力原単位の最少値から許容できる上昇範囲として約3%以内にするためには、設計上の空筒速度  $U$  の上下限は、

$$0.75u \leq U \leq 1.25u$$

となる。但し、この許容範囲は経済的許容範囲を示すもので、絶対的な制限を意味するものではない。

## 【0051】

これらの結果からわかるように、吸着剤粒子の相当直径  $a$  によって最適な原料

空気空筒速度が存在する。また、電力原単位として最小値が得られた点と吸着剤粒子の相当直径  $a$  との関係を求めたものを図5に示す。

## 【0052】

図5から明らかなように、吸着剤粒子の相当直径  $a$  が 1 mmにおいて、酸素 P S A 装置の電力原単位が最小値を示すことがわかる。

## 【0053】

ここで、一般に市販されている吸着剤粒子の形状、特に、ビーズ状の吸着剤においては、粒径分布を持ち、大小粒子径の混合物となっている。吸着剤の粒子径が問題となるような装置においては、特定の粒子径のところに粒径分布のピーク値を持つようにふるい分けされて販売されている。

## 【0054】

本発明においては、P S A 装置用吸着剤として特定の相当直径（直径を含む）を有する吸着剤を用いることによって P S A 装置の電力原単位を最少とするものであるから、前述の粒径分布のピークが特定値の範囲内にあることが望ましい。

## 【0055】

また、吸着剤の粒径分布の測定は、タイラー標準ふるい等のふるいを用いて測定されるが、用いるふるいの目開きにより 14 メッシュから以下、16 メッシュまで以上の範囲粒子が概ね 1 mm の径を持つことになる。一般には、このような狭い範囲で粒子径を選ぶと、商品として販売できる量が少なくなることから、ある程度ふるいに幅を持たせて、その範囲にある粒子の量（例えば重量%）が一定の割合以上とすることが行われている。

## 【0056】

本発明の吸着剤では、1 mmを中心とするその前後として、12 メッシュ以下 20 メッシュ以上の粒子が、重量%で全体の 70 %以上を占めるものを使用する。これより高いパーセンテージであればなお望ましいが、これより小さい割合であると、すなわち、より大きい、あるいは、より小さい粒子が相対的に多く含まれていると、得られる P S A 装置の性能として、期待される電力原単位の最小値が得られないことになる。

## 【0057】

なお、先のふるいの目開きを数値として表すと、20メッシュが0.833m m、12メッシュが1.397m mであるから、粒子径としては概ね $1 \pm 0.2$  m mが許容されることになる。前述の粒径分布による表現を取れば、 $1 \pm 0.2$  m mの範囲の相当直径又は直径を持つ量が全吸着剤量の少なくも70%ともいうことができる。

## 【0058】

## 【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、特定の直径又は相当直径、あるいは、特定のメッシュ範囲の吸着剤を使用することにより、P S A装置の電力原単位を最小にすることができる。また、吸着剤に対して特定の関係が成立するように吸着筒を形成することにより、P S A装置の性能を向上させることができる。

## 【図面の簡単な説明】

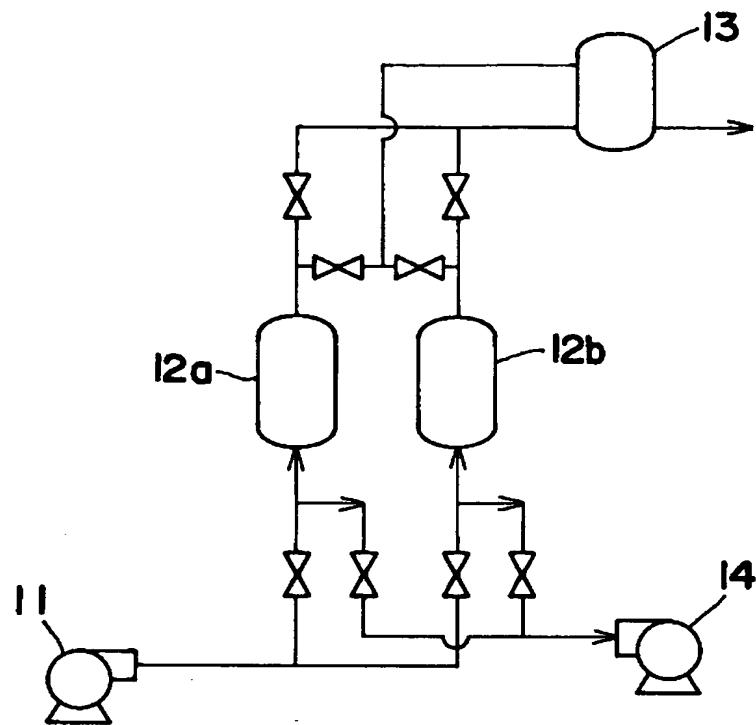
- 【図1】 シミュレーションの対象としたP S A装置を示す系統図である。
- 【図2】 P S Aプロセスの一例を示す図である。
- 【図3】 原料空気の空塔速度と電力原単位の比との関係を示す図である。
- 【図4】 粒子相当直径と電力原単位が最少となる原料空気の空筒速度との関係を示す図である。
- 【図5】 電力原単位として最小値が得られた点と吸着剤粒子の相当直径との関係を示す図である。

## 【符号の説明】

- 1 1 …原料空気ブロワー、1 2 a, 1 2 b …吸着筒、1 3 …サージタンク、1 4 …真空ポンプ

【書類名】 図面

〔圖 1〕



【図2】

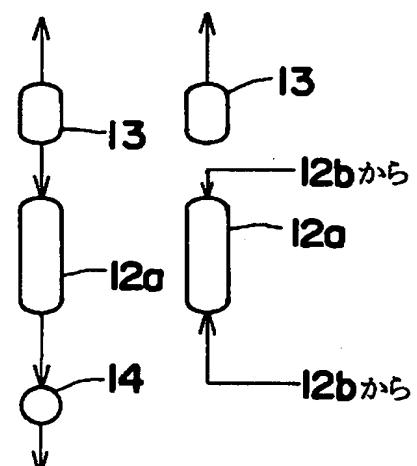
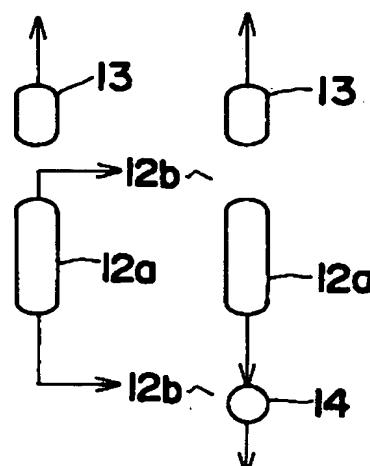
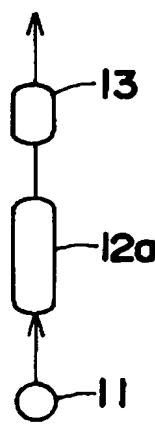
(T)

(□)

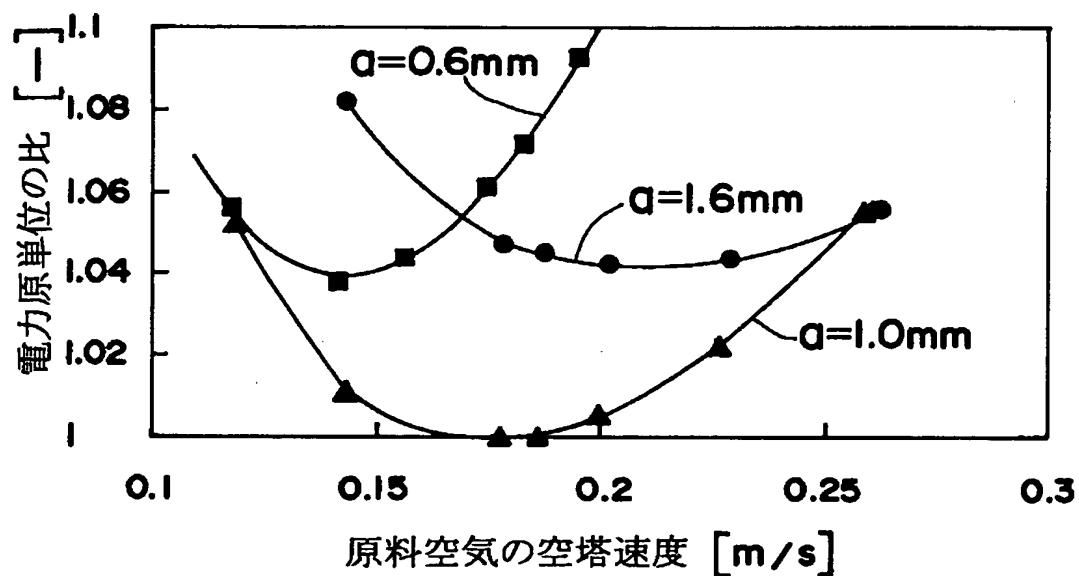
(八)

(二)

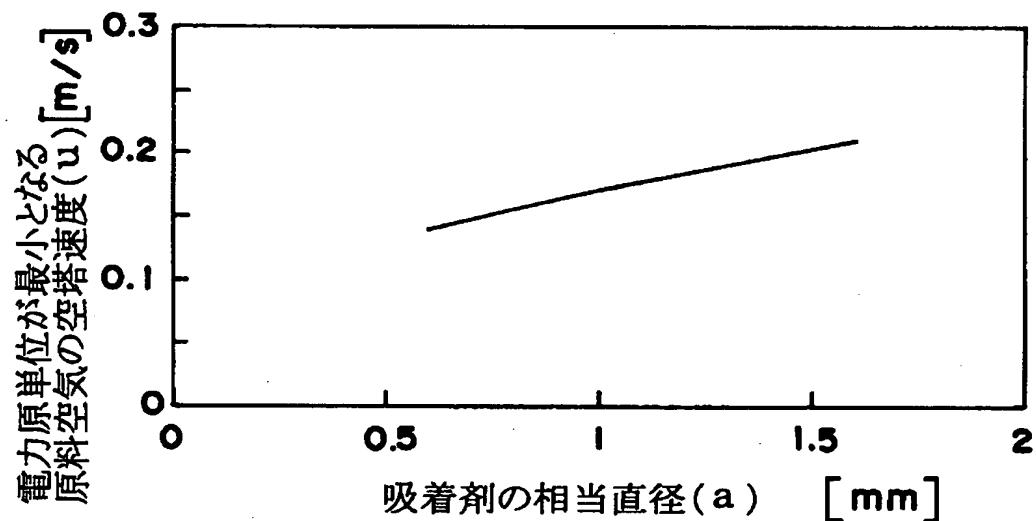
(木)



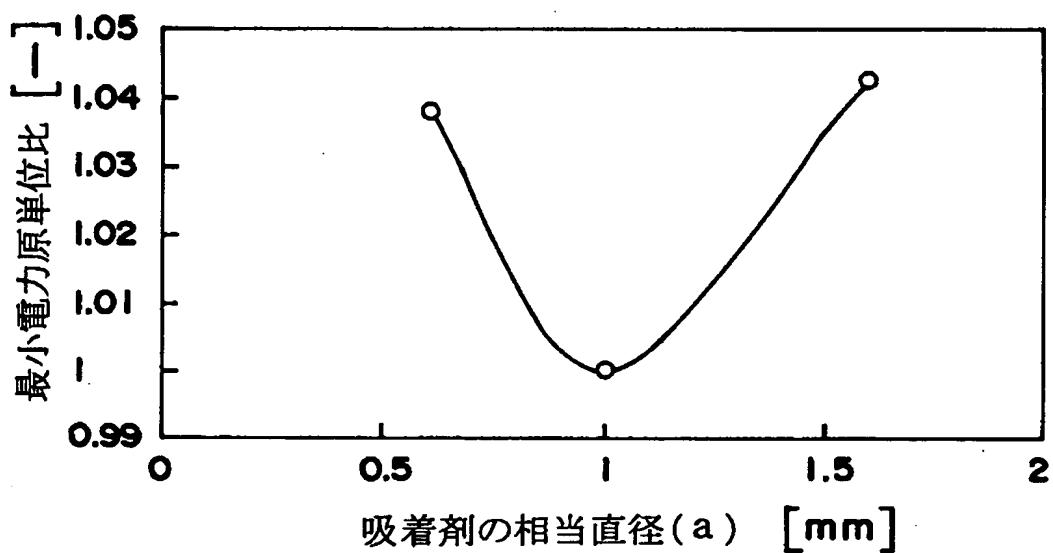
【図3】



【図4】



【図5】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 電力原単位を低減できる吸着剤の寸法及び形状、選定した吸着剤に対して最適な形状の吸着筒、圧力変動吸着分離性能に優れた圧力変動吸着分離装置を提供する。

【解決手段】 相当直径が  $1.0 \pm 0.2$  mm の範囲の吸着剤、あるいは、12 メッシュから 20 メッシュまでの範囲の吸着剤を使用する。吸着筒は、原料空気の空塔速度  $u$  [m/s] が吸着剤の相当直径  $a$  [mm] に対して、 $u = 0.07 a + 0.095$  の  $\pm 25\%$  の範囲になるように設定する。

【選択図】 図3

出願人履歴情報

識別番号 [000231235]

1. 変更年月日 1990年 8月16日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都港区西新橋1丁目16番7号

氏 名 日本酸素株式会社